

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 08-185984

(43)Date of publication of application : 16.07.1996

Int.Cl.

H05B 33/28
H05B 33/26

(71)Applicant : 06-336968

IDEMITSU KOSAN CO LTD
CITIZEN WATCH CO LTD

(72)Inventor : 27.12.1994

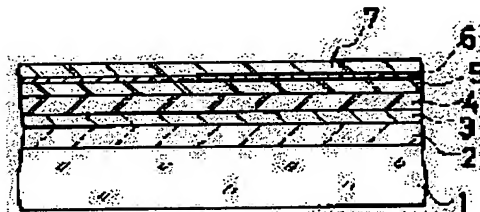
HIRONAKA YOSHIO
HIRAISHI HISATO
KAZAMA AYAKO

ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT

Abstract:

PROPOSE: To provide an organic EL element which is transparent as an element and has good emitting efficiency.

INSTITUTION: The thickness of an electron injecting metal layer 6 is set thin as several nm, and a second transparent conductive layer 7 is laminated on the electron injecting metal layer 6. Since the electron injecting characteristic managing the emitting intensity is ensured by the electron injecting metal layer of several nm, and the absorption of visual light in the electron injecting metal layer can be ignored, an organic EL element having a high transparency and good emitting efficiency can be provided.



LEGAL STATUS

Date of request for examination]

16.07.2001

Date of sending the examiner's decision of rejection]

Kind of final disposal of application other than the
examiner's decision of rejection or application converted
to registration]

Date of final disposal for application]

Patent number]

Date of registration]

Number of appeal against examiner's decision of
rejection]Date of requesting appeal against examiner's decision of
rejection]
[p://www19.ipdl.jpo.go.jp/PA1/result/detail/main/wAAAbnaipYDA408185984P1.htm](http://www19.ipdl.jpo.go.jp/PA1/result/detail/main/wAAAbnaipYDA408185984P1.htm)

3/23/2004

NOTICES *

an Patent Office is not responsible for any
 ages caused by the use of this translation.

his document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
 *** shows the word which can not be translated.
 the drawings, any words are not translated.

 AIMS

aim(s)]

aim 1] It is the organic electroluminescence element characterized by to prepare the organic thin film which consists of two or more layers, and the 1st and the 2nd electrode layer which are prepared in both sides of an organic thin film in the shape of a layer on a transperence substrate, for the 1st electrode layer to consist of a transperence conductive layer, for the 2nd electrode layer to consist of an electron injection metal layer of a super-thin film of the metal of a low work function prepared on an organic thin film, or the alloy of the metal, and a transperence conductive layer prepared on an electron injection metal layer.

aim 2] The organic thin film which consists of two or more layers, and the 1st and the 2nd electrode layer which are prepared in both sides of an organic thin film are prepared in the shape of a layer on a transperence substrate. The electron injection metal layer of a super-thin film of the metal of a low work function which the 1st electrode layer consists of a transperence conductive layer, and prepares the 2nd electrode layer on an organic thin film, or the alloy of metal, The organic electroluminescence element characterized by preparing a coloring layer in one near a part or near all of the construct which consists of a transperence conductive layer prepared on an electron injection metal layer, this construct.

aim 3] The organic thin film which consists of two or more layers, and the 1st and the 2nd electrode layer which are prepared in both sides of an organic thin film are prepared in the shape of a layer on a transperence substrate. The electron injection metal layer of a super-thin film of the metal of a low work function which the 1st electrode layer consists of a transperence conductive layer, and the 2nd electrode layer prepares on an organic thin film, or the alloy of metal, The organic electroluminescence element characterized by preparing either an acid-resisting layer or an ical diffusion layer in one construct [which consists of a transperence conductive layer prepared on an electron injection metal layer], and construct side.

aim 4] The organic thin film which consists of two or more layers, and the 1st and the 2nd electrode layer which are prepared in both sides of an organic thin film are prepared in the shape of a layer on a transperence substrate. The electron injection metal layer of a super-thin film of the metal of a low work function which the 1st electrode layer consists of a transperence conductive layer, and prepares the 2nd electrode layer on an organic thin film, or the alloy of metal, The organic electroluminescence element characterized by establishing either an acid-resisting layer or an ical diffusion layer for a coloring layer at one near a part or near all of the construct which consists of a transperence conductive layer prepared on an electron injection metal layer, and a construct at another side.

aim 5] Claim 2 characterized by the color of a coloring layer and the luminescent color of an organic electroluminescence having a complementary color relation mostly, or an organic electroluminescence element given in

aim 6] The thickness of an average of an electron injection metal layer is claims 1, 2, 3, and 4 characterized by being several nm, or an organic electroluminescence element given in 5.

ranslation done.]

NOTICES *

Japanese Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

*** shows the word which can not be translated.

In the drawings, any words are not translated.

TAILED DESCRIPTION

Detailed Description of the Invention]

[01]

[Industrial Application] This invention relates to the structure of an organic electroluminescence element (it is indicated in an organic EL device below).

[02]

[Description of the Prior Art] An electroluminescence (EL) component is useful as the object for a display, or a light emitting device for lighting, and the organic EL device which can especially be driven by the low battery can be called display device or light emitting device which was very excellent.

[03] Drawing 7 is the sectional view showing a typical organic EL device. On the transparency substrates 1, such as glass, the organic EL device is carrying out the laminating of each thin film of the transparency conductive layers 72, such as Indium Tin Oxide (ITO) and tin oxide (SnO₂), the electron hole transportation layers 3, such as a triphenylamine derivative, the luminous layers 4, such as a distyrylbiphenyl derivative, the electronic transportation layers 5, such as an aluminum chelate complex (Alq), and the metal-electrode layer 76 one by one.

[04] The small metal of a work function like magnesium (Mg) and a lithium (Li) as the quality of the material of the metal-electrode layer 76 or Mg-Ag, Mg-aluminum, and the small alloy of a work function like aluminum-Li are chosen etc.

[05] And if direct current voltage is impressed so that the transparency conductive layer 72 may just become to the metal-electrode layer 76, EL luminescence will take place in a luminous layer 4, and light will be emitted outside through the transparency substrate 1.

[06] Now, if a light emitting device is obtained as the transparent body, various practical effectiveness is expectable. For example, since the arrangement object of the lower part of a light emitting device appears at the time of un-emitting light when it uses for the lighting of the dial for clocks as indicated by U.S. JP,4,775,964,B, it can consider as the clock lighting which was extremely excellent in design nature.

[07] The very common organic EL device explained using this point and drawing 7 is [a metal-electrode layer 76 of about 100nm thickness] and is opaque. The transparent organic EL device is indicated by JP,6-151063,A.

[08] Drawing 8 is the sectional view showing the structure of a publication in the above-mentioned official report. In the transparency conductive layer 72 and the metal-electrode layer 76 have placed and changed to the 1st transparency conductive layer 82 of metal addition, and the 2nd transparency conductive layer 86.

[09] The purpose which performs metal addition tends to control the work function of each 1st transparency conductive layer 82 and the 2nd transparency conductive layer 86 by the addition metal, tends to gather the electron into organic EL device, or the injection efficiency of an electron hole, and, moreover, tends to raise luminescence reinforcement.

[10] In addition, the luminous layer 4 and the electronic transportation layer 5 in drawing 7 are replacing by the electronic transportability luminous layer 84 of 1 lamination here.

[11] As far as it is well-known as a variation of organic EL device structure whether what we do with the functional variation of each class of a luminous layer 4 and the electronic transportation layer 5, it takes into consideration and chooses luminous efficiency, the luminescent color, etc. and this invention is concerned, it can be said whether to be ** in future explanation that the selection can be performed freely.

[12] In addition, the black color layer 87 has established the contrast as a display object in order to improve.

[13]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] According to the experiment whose this invention person etc. formed and carried out structure of a publication in the above-mentioned official report about the conventional organic EL device

structure shown in drawing 8, it was difficult to realize sufficient luminescence reinforcement and the permeability of sufficient component to coincidence.

14] Although effect hardly receives the transparency of a transparency conductive layer, since in metal addition of about 1% or less of minute amount luminescence reinforcement fell remarkably and this was not able to maintain transparency by several% or more of metal addition, this invention person etc. thought.

15] And as for this invention person etc., in metal addition of about 1% or less of minute amount, that the work function of each transparency conductive layer is fully uncontrollable assumes as a cause of a luminescence fall on the length.

16] the purpose of this invention -- the above-mentioned technical-problem point -- solving -- as a component -- transparent -- an organic EL device with luminous efficiency sufficient moreover -- offer -- they are things.

17] [Means for Solving the Problem] In order to attain the above-mentioned purpose, the means of the following publication is used for the organic EL device in this invention.

18] The organic EL device in this invention is characterized by to have prepared the organic thin film which consists of two or more layers, and the 1st and the 2nd electrode layer prepared in both sides of an organic thin film in the shape of a layer on the transparency substrate, for the 1st electrode layer to consist of a transparency conductive layer, and for the 2nd electrode layer to consist of an electron injection metal layer of a super-thin film of the metal of a low work function prepared on an organic thin film, or the alloy of the metal, and a transparency conductive layer prepared on an electron injection metal layer.

19] The organic EL device in this invention has prepared the organic thin film which consists of two or more layers, and the 1st and the 2nd electrode layer which are prepared in both sides of an organic thin film in the shape of a layer on the transparency substrate. The electron injection metal layer of a super-thin film of the metal of a low work function and the 2nd electrode layer prepares on an organic thin film by the 1st electrode layer consisting of a transparency conductive layer, or the alloy of the metal, It is characterized by preparing a coloring layer in one near a part or near all of the construct which consists of a transparency conductive layer prepared on an electron injection metal layer, and a construct side.

20] The organic EL device in this invention has prepared the organic thin film which consists of two or more layers, and the 1st and the 2nd electrode layer which are prepared in both sides of an organic thin film in the shape of a layer on the transparency substrate. The electron injection metal layer of a super-thin film of the metal of a low work function and the 2nd electrode layer prepares on an organic thin film by the 1st electrode layer consisting of a transparency conductive layer, or the alloy of the metal, It is characterized by preparing either an acid-resisting layer or an optical fusion layer in one construct [which consists of a transparency conductive layer prepared on an electron injection metal layer], and construct side.

21] The organic EL device in this invention has prepared the organic thin film which consists of two or more layers, and the 1st and the 2nd electrode layer which are prepared in both sides of an organic thin film in the shape of a layer on the transparency substrate. The electron injection metal layer of a super-thin film of the metal of a low work function and the 2nd electrode layer prepares on an organic thin film by the 1st electrode layer consisting of a transparency conductive layer, or the alloy of the metal, It is characterized by establishing either an acid-resisting layer or an optical fusion layer for a coloring layer at one near a part or near all of the construct which consists of a transparency conductive layer prepared on an electron injection metal layer, and a construct at another side.

22] The coloring layer of the organic EL device in this invention is characterized by the color of a coloring layer and the luminescent color of an organic electroluminescence having a complementary color relation mostly.

23] The electron injection metal layer of the organic EL device in this invention is characterized by average thickness being several nm.

24] [Function] The organic EL device of this invention prepares the organic thin film which consists of two or more layers, and the 1st and the 2nd electrode layer which are prepared in the both sides of an organic thin film in the shape of a layer on a transparency substrate.

25] And the 1st electrode layer consists of a transparency conductive layer, and the 2nd electrode layer consists of an ultra-thin electron injection metal layer of the metal of a low work function prepared on an organic thin film, or its alloy, and a transparency conductive layer formed on the electron injection metal layer. And an electron injection metal layer has thickness of the average as a several nm thin film.

26] According to this invention, the electron injection metal layer of several nm very thin thickness is prepared. For this reason, most absorption of light can be disregarded, and since it moreover shows the property of the work function

metallic material original, it can perform electron injection to an organic thin film efficiently.

27] from this -- transparent -- in addition -- and an organic EL device with a sufficient luminescence property can be made.

28]

ample] the example of the following and this invention -- the structure of the organic EL device to be explained is shown on a drawing. Drawing 1 is the sectional view showing the organic EL device in the 1st example of this invention.

29] As shown in the sectional view of drawing 1, it prepares so that the laminating of the 1st transparency substrate 1, the electron hole transportation layer 2, the electron hole transportation layer 3, a luminous layer 4, the electronic transportation layer 5, the electron injection metal layer 6, and the 2nd transparency conductive layer 7 may be carried out one by one on the transparency substrate 1.

30] The point of the structure of the organic EL device in this invention is the electron injection metal layer 6. That is, although the electron injection metal layer 6 quality of the material chooses the small metal of a work function with sufficient electron injection effectiveness, or its alloy like the conventional example, it is very important in this invention to make very thin thickness of the electron injection metal layer 6 with several nm.

31] Although the film with the perfect electron injection metal layer 6 not becoming, but becoming what grew in the shape of an island is also considered at this time, it will be satisfactory, if average thickness is several nm even if it is an imperfect film.

32] In the electron injection metal layer 6 of this thickness, absorption of the light in a metal layer is several % at the maximum, and the transparency as an organic EL device can be maintained.

33] Here, the electron injection effectiveness from an electron injection electrode layer side is almost equivalent to the time of being the former whose thickness of the electron injection metal layer 6 is about 100nm.

34] As a component of drawing 1, the transparency substrate 1 consists of high polymer films, such as glass or polyester.

35] Furthermore, the 1st transparency conductive layer 2 and the 2nd transparency conductive layer 6 are ITO of 100nm - 200nm thickness, and SnO₂. It constitutes.

36] Furthermore, in a luminous layer 4, the electronic transportation layer 5 uses [the electron hole transportation layer 3] an about 50nm aluminum chelate complex (Alq) using the distyrylbiphenyl derivative of about 50nm of thickness using the triphenylamine derivative of 50nm - 100nm of thickness.

37] The manufacture approach for forming the organic EL device structure shown in drawing 1 below is explained. First, ITO of 100nm of thickness is formed by the sputtering method on the polish glass of 1.1mm thickness.

38] Furthermore, the triphenyl diamine (TPD:N, N'-diphenyl-N, N'-JI (3-methylphenyl) -4, 4'-diamino biphenyl) of 100nm of thickness is formed with vacuum evaporation technique, the JISUCHIRI ruby phenyl (DPVBi:4 and 4'-screw and 2-diphenyl vinyl) biphenyl) of 40nm of thickness is formed, and the aluminum chelate complex (Alq: tris (eight nolinol) aluminum) of 20nm of thickness is formed further.

39] Furthermore, (Magnesium Mg)-silver (Ag) is formed 2nm of thickness with a coincidence vacuum deposition method on it.

40] Then, ITO of 150nm of thickness is formed by the SUPPATA Ling's method, and it considers as the organic EL device shown in drawing 1.

41] Thus, when the electrical potential difference of 9V was impressed to the obtained organic EL device, it is 90 lm². Luminescence brightness was obtained.

42] This luminescence brightness value was not different from the case where it is the component of Mg-Ag of the thickness whose metal-electrode layer 76 is 100nm, with the structure shown in conventional drawing 7.

43] And the organic EL device of this invention had the permeability of the light almost as more transparent still as 90%.

44] As already stated, it is important to form the several nm very thin electron injection metal layer 6 in the organic EL device in the example of this invention.

45] Therefore, even if it sees the laminated structure from the 1st transparency conductive layer 2 of drawing 1 to the 2nd transparency conductive layer 7 as one and arranges the transparency substrate 1 on the 2nd transparency conductive layer 7 side, there is completely the same effectiveness.

46] Moreover, the organic thin film part of the electron hole transportation layer 3 about luminescence of an organic EL device, a luminous layer 4, and the electronic transportation layer 5 has the completely same effectiveness as the above explanation in other combination, such as an electron hole transportation layer and an electronic transportability luminous layer.

147] Drawing 2 is the sectional view showing the organic EL device in the 2nd example of this invention. In the organic EL device of the same configuration as drawing 1, the coloring layer 8 is added to a 2nd transparency conductive layer side.

148] Although the coloring layer 7 is the spreading film which used the color or the pigment, it does not necessarily need to be monochrome and also includes the pattern of arbitration.

149] The thickness of the coloring layer 8 chooses and is satisfactory in several micrometers - hundreds of micrometers. Furthermore, the coloring layer 8 does not need to be structure pasted up on the 2nd transparency conductive layer 7, and the separated structure is sufficient as it as it has only touched.

150] The coloring layer 8 can also be put on the 2nd transparency conductive layer 7 side further again using the plastic sheet colored paint or the whole.

151] The structure of drawing 2 is similar with the configuration of drawing 8 which shows the structure of the conventional example. However, since it is mostly visible to the luminescent color according to this invention to drawing 8 being what only measures improvement in the contrast as a display device at the time of luminescence which let a transparent organic EL device pass and can see the color and pattern of the coloring layer 8 when it sees from transparency substrate 1 side at the time of un-emitting [of an organic EL device] light, various light effects are realizable.

152] Furthermore, as shown, for example in the optical spectrum of drawing 3, this red considers the case where it considers as combination with blue as shown with the emission spectrum 32 which has a complementary color relation, the red shown with the reflectance spectrum 31 as a coloring layer 8, and the luminescent color. In addition, as blue, UCHIRI ruby phenyl (DPVBi) was used as coloring matter, using a minium as red.

153] Naturally it will be visible to the red of the coloring layer 8 at the time of organic electroluminescence un-emitting light. On the other hand, at the time of organic electroluminescence luminescence, the red which outdoor light reflected from the coloring layer, and the blue of the luminescent color can carry out color mixture, and the color which was extremely rich in change can be directed from becoming various hues, such as reddish, a blue system, or a white system, according to the reinforcement of outdoor daylight.

154] Drawing 4 is another example of this invention, and forms the acid-resisting layer 9 in the inferior surface of tongue of the transparency substrate 1 of drawing 2 further. In addition, if it becomes common more and an inferior face of tongue here is expressed correctly, it will become an interface with the air of the side which looks at luminescence of an organic EL device.

155] As an acid-resisting layer, the thing like the nonreflective film formed with the multilayer interference thin film in which refractive indexes differ is usually used as known well.

156] thus, reflection in the front face of the transparency substrate 1 is suppressed -- if it becomes -- an environment light in the state of un-emitting light -- an organic EL device -- when it is, the color and pattern of a coloring layer can be seen more vividly.

157] Furthermore, it is also very effective in the part of the acid-resisting layer 9 to prepare the layer which has optical fusibility like an obscured glass or the translucent ceramics as the substitute.

158] Since the specular reflection in the inferior surface of tongue of the transparency substrate 1 can protect at this time, at the time of component luminescence it not only can acquire a soft color tone, but sometimes generated in any at the time of un-emitting light and luminescence at the time of organic EL device formation and use, there is effectiveness which covers visually the minute non-light-emitting part used as a sunspot, and it becomes a practical big advantage.

159] Drawing 5 and drawing 6 are the sectional views showing the configuration when applying the organic EL device of this invention to a clock.

160] As explanation of drawing 1 also described, drawing 5 shows the example of a configuration of arranging the transparency substrate 1 to the 2nd transparency conductive layer 7 side, and forms the still more nearly same coloring layer 8 as drawing 2 in the inferior surface of tongue of the transparency substrate 1. The transparent dial 10 for clocks is arranged like drawing 5 further again.

161] Here, the dial and organic EL device which printed the time-of-day alphabetic character are used as another object, and there is an advantage that components manufacture can be made easy.

162] Drawing 6 is the sectional view showing the clock incorporating the organic EL device of the example of this invention. An organic EL device is the same configuration as drawing 2, and since the transparency substrate 1 serves as the dial here, it prints a time-of-day alphabetic character to the side which does not form the luminous layer of the transparency substrate 1.

163] In drawing 6, the movement 62 which drives a guide 61 is formed in the sheathing 64 incorporating the windshield 63 which consists of clear glass or sapphire.

54] In this movement 62, although illustration is not carried out, it has the quartz resonator, the semiconductor integrated circuit for driving a pulse motor, and the wheel train device in which a guide 61 is driven. Furthermore, the clock lid 65 stops sheathing 64 and it is used as a clock completion object.

65] If an electrical potential difference is impressed to an organic EL device with such structure using the cell and touch which are the power source which did not carry out illustration here, light will be emitted, and also in a dark place, a clock display can be recognized skillfully.

66] On the other hand, in a bright place, the color or pattern of the coloring layer 8 is recognized as a dial, and various kinds of design nature as a clock can be pursued.

67] If all or a part of coloring layers 8 are omitted, when an organic EL device will not emit light in drawing 6 here again, the whole movement 62 or a part can be seen. For example, a very interesting clock can consist of making wheel train device section visible.

68] [Effect of the Invention] According to the organic EL device of this invention, in a luminescence condition, a configuration, color, etc. of an object which arrange the luminescent color of the usual organic electroluminescence on background of a transparent organic EL device in the condition of not emitting light again can be seen like [it is *** with field explanation and] above.

69] Consequently, when it is used as a dial for clocks, the clock which can be rich in design nature and can moreover a time stamp easily also in a dark place can be offered.

translation done.]

OTICES *

an Patent Office is not responsible for any
ages caused by the use of this translation.

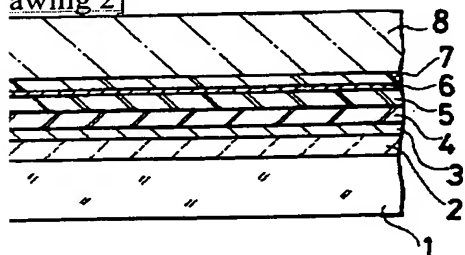
his document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

*** shows the word which can not be translated.

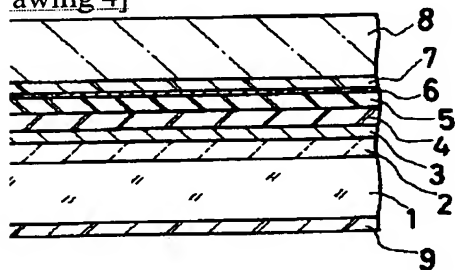
the drawings, any words are not translated.

AWINGS

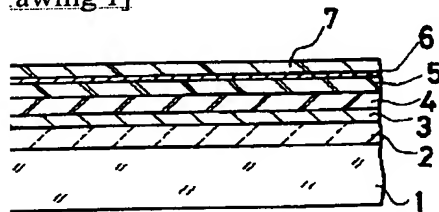
rawing 2]



rawing 4]

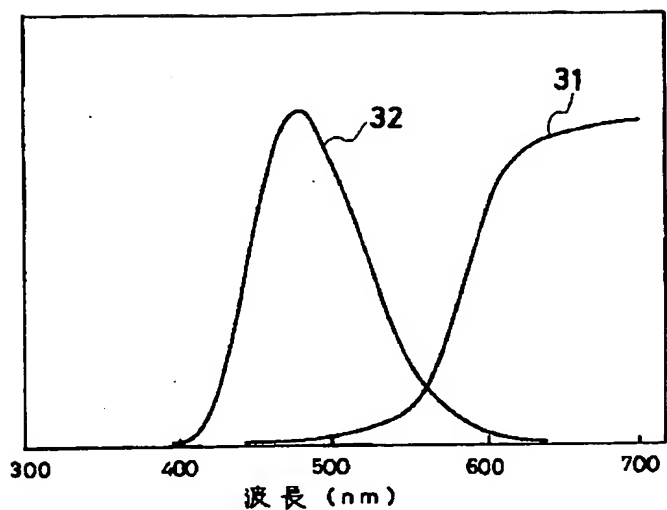


rawing 1]

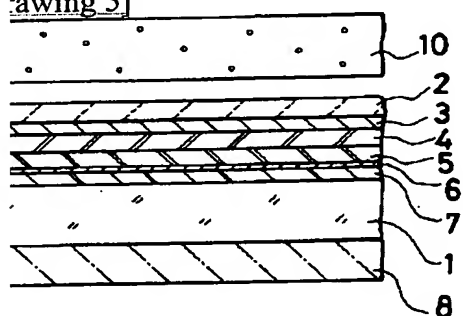


- 1. 透明基板
- 4. 発光層
- 5. 電子輸送層
- 6. 電子注入金属層

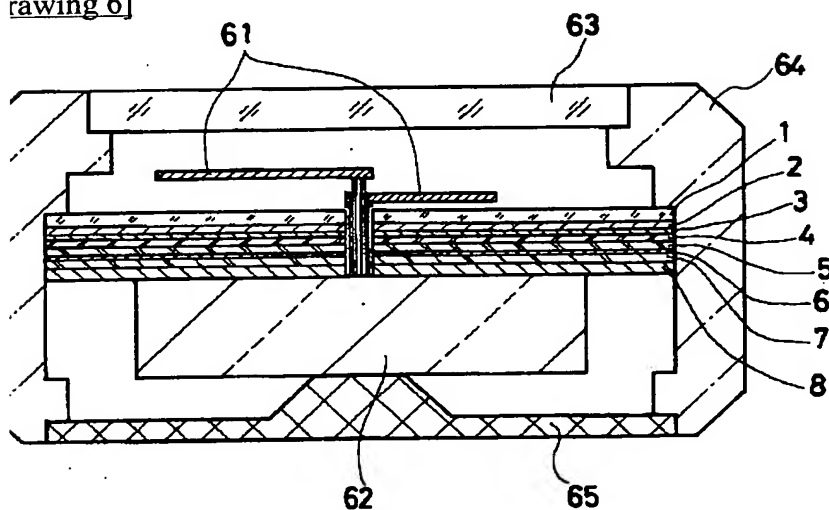
rawing 3]



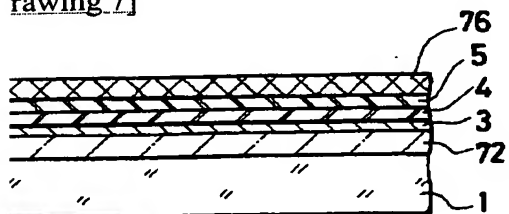
rawing 5]



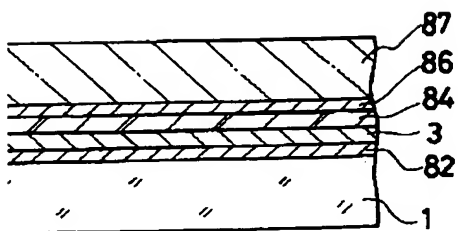
rawing 6]



rawing 7]



rawing 8]



anslation done.]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平8-185984

(43) 公開日 平成8年(1996)7月16日

(51) Int.Cl.⁵

H 0 5 B 33/28
33/26

識別記号

庁内整理番号

F I

技術表示箇所

審査請求 未請求 請求項の数6 F D (全 7 頁)

(21) 出願番号 特願平6-336968

(22) 出願日 平成6年(1994)12月27日

(71) 出願人 000183646

出光興産株式会社

東京都千代田区丸の内3丁目1番1号

(71) 出願人 000001960

シチズン時計株式会社

東京都新宿区西新宿2丁目1番1号

(72) 発明者 弘中 義雄

千葉県袖ヶ浦市上泉1280 出光興産株式会
社内

(72) 発明者 平石 久人

埼玉県所沢市大字下富字武野840番地 シ
チズン時計株式会社技術研究所内

(74) 代理人 弁理士 高宗 寛暁

最終頁に続く

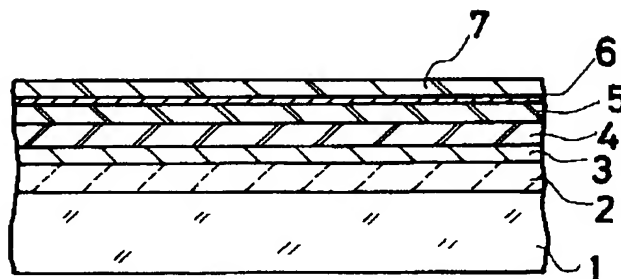
(54) 【発明の名称】 有機エレクトロルミネセンス素子

(57) 【要約】

【目的】 素子としては透明で、かつ発光効率のよい有機EL素子を得ること。

【構成】 従来の有機EL素子では、電子注入金属層としては膜厚が100nm程度の仕事関数の小さな金属層を用いたが、本発明ではこの電子注入金属層6膜厚を数nmと薄くし、さらにこの電子注入金属層6上に第2の透明導電層7を積層する。

【効果】 発光強度を支配する電子注入特性は数nmの電子注入金属層により確保し、しかもこの電子注入金属層での可視光の吸収は無視できるので、透明度が高く、かつ発光効率のよい有機EL素子を得ることができる。



1. 透明基板

4. 発光層

5. 電子輸送層

6. 電子注入金属層

(2)

1

【特許請求の範囲】

【請求項1】 複数の層よりなる有機薄膜と、有機薄膜の両面に設ける第1と第2の電極層とを透明基板上に層状に設け、第1の電極層は透明導電層よりなり、第2の電極層は有機薄膜上に設ける低仕事関数の金属またはその金属の合金の超薄膜の電子注入金属層と、電子注入金属層上に設ける透明導電層とよりなることを特徴とする有機エレクトロルミネセンス素子。

【請求項2】 複数の層よりなる有機薄膜と、有機薄膜の両面に設ける第1と第2の電極層とを透明基板上に層状に設け、第1の電極層は透明導電層よりなり、第2の電極層は有機薄膜上に設ける低仕事関数の金属またはその金属の合金の超薄膜の電子注入金属層と、電子注入金属層上に設ける透明導電層とよりなる構成体とこの構成体の一方の側の一部または全部に着色層を設けることを特徴とする有機エレクトロルミネセンス素子。

【請求項3】 複数の層よりなる有機薄膜と、有機薄膜の両面に設ける第1と第2の電極層とを透明基板上に層状に設け、第1の電極層は透明導電層よりなり、第2の電極層は有機薄膜上に設ける低仕事関数の金属またはその金属の合金の超薄膜の電子注入金属層と、電子注入金属層上に設ける透明導電層とよりなる構成体と構成体の一方の側に反射防止層または光拡散層のいずれかを設けることを特徴とする有機エレクトロルミネセンス素子。

【請求項4】 複数の層よりなる有機薄膜と、有機薄膜の両面に設ける第1と第2の電極層とを透明基板上に層状に設け、第1の電極層は透明導電層よりなり、第2の電極層は有機薄膜上に設ける低仕事関数の金属またはその金属の合金の超薄膜の電子注入金属層と、電子注入金属層上に設ける透明導電層とよりなる構成体と構成体の一方の側の一部または全部に着色層を、もう一方の側に反射防止層または光拡散層のいずれかを設けることを特徴とする有機エレクトロルミネセンス素子。

【請求項5】 着色層の色と、有機エレクトロルミネセンスの発光色とがほぼ補色関係にあることを特徴とする請求項2あるいは4に記載の有機エレクトロルミネセンス素子。

【請求項6】 電子注入金属層の平均の厚さは数nmであることを特徴とする請求項1、2、3、4あるいは5に記載の有機エレクトロルミネセンス素子。

【発明の詳細な説明】

【00001】

【産業上の利用分野】 本発明は、有機エレクトロルミネセンス素子（以下有機EL素子と記載する）の構造に関するものである。

【00002】

【従来の技術】 エレクトロルミネセンス（EL）素子は表示用あるいは照明用の発光素子として有用で、とりわけ低電圧で駆動可能な有機EL素子は、非常に優れた表示素子あるいは発光素子といえる。

2

【00003】 図7は典型的な有機EL素子を示す断面図である。有機EL素子はガラスなどの透明基板1の上に、酸化インジウムスズ（ITO）や酸化スズ（SnO₂）などの透明導電層72と、トリフェニルジアミン誘導体などの正孔輸送層3と、ジスチリルピフェニル誘導体などの発光層4と、アルミキレート錯体（Alq）などの電子輸送層5と、金属電極層76との各薄膜を順次積層している。

【00004】 ここで金属電極層76の材質としてマグネシウム（Mg）やリチウム（Li）のような仕事関数の小さな金属、またはMg-Ag、Mg-Al、Al-Liのような仕事関数の小さな合金を選ぶ。

【00005】 そして金属電極層76に対して透明導電層72が正になるように直流電圧を印加すると、発光層4においてEL発光が起こり、透明基板1を通して光は外部に放射する。

【00006】 さて発光素子が透明体として得られると、種々の実用上の効果が期待できる。たとえば、アメリカ特許4,775,964号に開示されたように、時計用文字板の照明に用いると、非発光時には発光素子の下部の配置物が見えるので、きわめてデザイン性に優れた照明付き時計とすることができる。

【00007】 この点、図7を用いて説明したごく一般的な有機EL素子は、100nm程度の膜厚の金属電極層76があり不透明である。透明な有機EL素子については、特開平6-151063号公報に記載されている。

【00008】 図8は上記公報に記載の構造を示す断面図である。透明導電層72と金属電極層76とは、ともに金属添加の第1の透明導電層82と第2の透明導電層86とに置き変わっている。

【00009】 金属添加を行う目的は、添加金属によりそれぞれの第1の透明導電層82と第2の透明導電層86との仕事関数を制御し、有機EL素子内への電子あるいは正孔の注入効率を上げ、しかも発光強度を高めようとするものである。

【00010】 なお、ここでは図7での発光層4と電子輸送層5とが、1層構成の電子輸送性発光層84で置き換えてている。

【00011】 発光層4と電子輸送層5との各層をどのように機能分離するかは、有機EL素子構造のバリエーションとして公知であり、発光効率や発光色などを勘案して選択するものであつて、本発明に関する限りその選択が自由にできることは今後の説明から明かといえよう。

【00012】 なお、黒色染料層87は、表示体としてのコントラストを向上する目的で設けている。

【00013】

【発明が解決しようとする課題】 図8に示す従来の有機EL素子構造について、本発明者等が上記公報に記載の構造を形成し実施した実験によれば、充分な発光強度と、充分な素子の透過率とを同時に実現することは困難

50

(3)

3

であった。

【0014】これは、1%程度以下の微量の金属添加の場合は、透明導電層の透明度はほとんど影響は受けないものの、発光強度が著しく低下し、数%以上の金属添加では透明性が維持できないためと本発明者等は考えた。

【0015】そして1%程度以下の微量の金属添加の場合、それぞれの透明導電層の仕事関数を十分に制御できないことが、発光強度低下の原因として、本発明者等は想定する。

【0016】本発明の目的は、上記の課題点を解決して、素子としては透明で、しかも発光効率のよい有機EL素子を提供ことである。

【0017】

【課題を解決するための手段】上記目的を達成するために、本発明における有機EL素子は、下記記載の手段を採用する。

【0018】本発明における有機EL素子は、複数の層よりなる有機薄膜と、有機薄膜の両面に設ける第1と第2の電極層とを透明基板上に層状に設けており、第1の電極層が透明導電層よりなり、第2の電極層が有機薄膜上に設ける低仕事関数の金属またはその合金の超薄膜の電子注入金属層と、電子注入金属層上に設ける透明導電層とよりなることを特徴とする。

【0019】本発明における有機EL素子は、複数の層よりなる有機薄膜と、有機薄膜の両面に設ける第1と第2の電極層とを透明基板上に層状に設けており、第1の電極層が透明導電層よりなり、第2の電極層が有機薄膜上に設ける低仕事関数の金属またはその合金の超薄膜の電子注入金属層と、電子注入金属層上に設ける透明導電層とよりなる構成体、および構成体の一方の側の一部または全部に着色層を設けることを特徴とする。

【0020】本発明における有機EL素子は、複数の層よりなる有機薄膜と、有機薄膜の両面に設ける第1と第2の電極層とを透明基板上に層状に設けており、第1の電極層が透明導電層よりなり、第2の電極層が有機薄膜上に設ける低仕事関数の金属またはその合金の超薄膜の電子注入金属層と、電子注入金属層上に設ける透明導電層とよりなる構成体、および構成体の一方の側に反射防止層または光拡散層のいずれかを設けることを特徴とする。

【0021】本発明における有機EL素子は、複数の層よりなる有機薄膜と、有機薄膜の両面に設ける第1と第2の電極層とを透明基板上に層状に設けており、第1の電極層が透明導電層よりなり、第2の電極層が有機薄膜上に設ける低仕事関数の金属またはその合金の超薄膜の電子注入金属層と、電子注入金属層上に設ける透明導電層とよりなる構成体、および構成体の一方の側の一部または全部に着色層をもう一方の側に反射防止層または光拡散層のいずれかを設けることを特徴とする。

【0022】本発明における有機EL素子の着色層は、

4

着色層の色と有機エレクトロルミネセンスの発光色とがほぼ補色関係にあることを特徴とする。

【0023】本発明における有機EL素子の電子注入金属層は、平均の厚さは数nmであることを特徴とする。

【0024】

【作用】本発明の有機EL素子は、複数の層よりなる有機薄膜と、有機薄膜の両側に設ける第1と第2の電極層とを透明基板上に層状に設ける。

【0025】そして、第1の電極層は透明導電層よりなり、第2の電極層は有機薄膜上に設ける低仕事関数の金属またはその合金の極薄の電子注入金属層と、電子注入金属層上に形成した透明導電層とよりなる。そして、電子注入金属層は、その平均の厚さを数nmの薄膜とする。

【0026】本発明によれば、数nmのきわめて薄い膜厚の電子注入金属層を設けている。このため、光の吸収はほとんど無視でき、しかも金属材料本来の仕事関数の特性を示すので有機薄膜への電子注入を効率よく行うことができる。

【0027】このことから、透明でなおかつ発光特性のよい有機EL素子を得ることができる。

【0028】

【実施例】以下、本発明の実施例における有機EL素子の構造を図面に基づいて説明する。図1は本発明の第1の実施例における有機EL素子を示す断面図である。

【0029】図1の断面図に示すように、透明基板1の上に第1の透明導電層2と、正孔輸送層3と、発光層4と、電子輸送層5と、電子注入金属層6と、第2の透明導電層7とを順次積層するように設ける。

【0030】本発明における有機EL素子の構造のポイントは、電子注入金属層6である。すなわち、電子注入金属層6材質は従来例と同様に、電子注入効率のよい仕事関数の小さな金属またはその合金を選ぶものであるが、電子注入金属層6の厚さを数nmときわめて薄くすることが、本発明において非常に重要である。

【0031】このとき、電子注入金属層6が完全な膜とはならず、島状に成長したものになることも考えられるが、そのような不完全な膜であっても平均の厚さが数nmであれば問題はない。

【0032】この厚さの電子注入金属層6では、金属層における可視光の吸収は最大で数%であり、有機EL素子としての透明性は維持することができる。

【0033】ここで、電子注入電極層側からの電子注入効率は、電子注入金属層6の膜厚が100nm程度の従来のときとほぼ同等である。

【0034】図1の構成要素としては、透明基板1はガラスあるいはポリエステルなどの高分子フィルムで構成する。

【0035】さらに、第1の透明導電層2と第2の透明導電層6は100nm～200nmの膜厚のITOやS

(4)

5

nO₂で構成する。

【0036】さらに、正孔輸送層3は膜厚50nm～100nmのトリフェニルアミン誘導体を用い、発光層4は膜厚50nm程度のジスチリルビフェニル誘導体を用い、電子輸送層5は50nm程度のアルミキレート錯体(A1q)を用いる。

【0037】つぎに図1に示す有機EL素子構造を形成するための製造方法を説明する。まずはじめに、1.1mm厚の研磨ガラス上に膜厚100nmのITOをスパッタリング法により形成する。

【0038】さらに真空蒸着法により膜厚60nmのトリフェニルジアミン(TPD:N,N'-ジフェニル-N,N'-ジ(3-メチルフェニル)-4,4'-ジアニミノビフェニル)を形成し、膜厚40nmのジスチリルビフェニル(DPVBi:4,4'-ビス(2,2-ジフェニルビニル)ビフェニル)を形成し、さらに膜厚20nmのアルミキレート錯体(A1q:トリス(8-キノリノール)アルミニウム)を形成する。

【0039】さらに、その上にマグネシウム(Mg)-銀(Ag)を同時真空蒸着法にて、膜厚2nm形成する。

【0040】その後、膜厚150nmのITOをスパッタリング法で形成して、図1に示す有機EL素子とする。

【0041】このようにして得た有機EL素子に9Vの電圧を印加したところ、90cd/m²の発光輝度が得られた。

【0042】この発光輝度値は、従来の図7に示す構造で金属電極層76が100nmの膜厚のMg-Agの素子の場合と変わらなかった。

【0043】そしてさらに、本発明の有機EL素子は、可視光の透過率が87%と、ほぼ透明であった。

【0044】すでに述べたように、本発明の実施例における有機EL素子では、数nmのきわめて薄い電子注入金属層6を設けることが重要である。

【0045】したがって、図1の第1の透明導電層2から第2の透明導電層7までの積層構造を一体としてみて、透明基板1を第2の透明導電層7の側に配したとしても、まったく同一の効果がある。

【0046】また、有機EL素子の発光に関する正孔輸送層3と、発光層4と、電子輸送層5との有機薄膜部分は、正孔輸送層と電子輸送性発光層などの他の組み合わせでも、以上の説明とまったく同一の効果を有する。

【0047】図2は本発明の第2の実施例における有機EL素子を示す断面図である。図1と同じ構成の有機EL素子において、第2の透明導電層側に着色層8を付加したものである。

【0048】着色層7は、染料または顔料を用いた塗布膜であるが、必ずしも単色である必要はなく、任意の模様をも含むものである。

6

【0049】着色層8の厚さは数μm～数百μmの範囲で選択して問題ない。さらに、着色層8は第2の透明導電層7に接着する構造である必要はなく、単に接しているだけ、あるいは分離した構造でもよい。

【0050】さらにまた着色層8は、塗装あるいは全体に着色したプラスチック板を用い、第2の透明導電層7の側に重ねることもできる。

【0051】図2の構造は従来例の構造を示す図8の構成と類似している。しかしながら、図8が単に表示素子としてのコントラストの向上を計るものであるのに対して、本発明によれば、有機EL素子の非発光時において、透明基板1の側から見たときに透明な有機EL素子を通して、着色層8の色や模様を見ることができるのである発光時にはほぼその発光色に見えるので、種々の照明効果が実現できるものである。

【0052】さらに、たとえば図3の光学スペクトルに示すように、着色層8として反射スペクトル31で示した赤色と、発光色としてこの赤色とは補色関係にある発光スペクトル32で示したような青色との組み合わせと20する場合を考える。なお、赤色としては鉛丹を用い、青色としてはジスチリルビフェニル(DPVBi)を色素として用いた。

【0053】有機EL非発光時には、当然、着色層8の赤色に見えることになる。一方、有機EL発光時には、外光が着色層から反射した赤色と発光色の青色とが混色し、外光の強度に応じて、赤系、青系、白系などの種々の色相となることから、きわめて変化に富んだ色彩を演出することができる。

【0054】図4は本発明の別の実施例で、図2の透明基板1の下面にさらに反射防止層9を形成したものである。30 なお、ここでいう下面を、より一般化して正確に表現するならば、有機EL素子の発光を見る側における空気との境界面となる。

【0055】反射防止層としては通常よく知られているように、屈折率の異なる多層干渉薄膜で形成した無反射膜のごときものを用いる。

【0056】このようにして透明基板1の表面での反射を抑えるならば、非発光状態で明るい環境に有機EL素子おいたとき、より鮮明に着色層の色や模様を見ることが35 できるのである。

【0057】さらに、反射防止層9の部分に、その代わりとしてスリガラスや半透明のセラミックスのような光拡散性を有する層を設けることも、非常に有効である。

【0058】このとき、透明基板1の下面での鏡面反射が防ぐことができるため、非発光時と発光時の何れにおいてもソフトな色調を得ることができるばかりでなく、有機EL素子形成時や使用時に時として発生する、素子発光時には黒点となる微小な非発光部を視覚的に遮蔽する効果が35 あり、実用上の大きな利点となる。

【0059】図5と図6とは、本発明の有機EL素子を50

(5)

7

時計に応用したときの構成を示す断面図である。

【0060】図5は、図1の説明でも述べたように、透明基板1を第2の透明導電層7の側に配置する構成の実施例を示し、さらに図2と同様の着色層8を透明基板1の下面に設ける。さらにまた、透明な時計用文字板10を図5のように配するものである。

【0061】ここでは、時刻文字を印刷した文字板と有機EL素子とを別体としてあり、部品製造を容易にできるという利点がある。

【0062】図6は本発明の実施例の有機EL素子を組み込んだ時計を示す断面図である。有機EL素子は図2と同一の構成であり、ここでは透明基板1が文字板を兼ねているため、透明基板1の発光層を形成していない側に時刻文字を印刷する。

【0063】図6では、透明ガラスやサファイアからなる風防63を組み込んだ外装64内に、指針61を駆動するムーブメント62を設ける。

【0064】このムーブメント62内には、図示はしないが、水晶振動子と、パルスモーターを駆動するための半導体集積回路と、指針61を駆動する輪列機構とを備えている。さらに、外装64は裏蓋65によって封じて、時計完成体とするものである。

【0065】このような構造で、ここでは図示はしなかった電源である電池とスイッチとを用いて有機EL素子に電圧を印加すると発光し、暗所においても時計表示を鮮やかに認識できる。

【0066】一方、明所においては文字板として着色層8の色または模様が認識され、時計としての各種のデザイン性を追求できる。

【0067】さらにまた図6において、着色層8の全部あるいは一部を省略するならば、有機EL素子が非発光のときには、ムーブメント62の全体あるいは一部が見えることになる。たとえば、輪列機構部が見えるようにすることで、非常に面白い時計を構成することができる。

【0068】

8

【発明の効果】以上野説明で明かなように、本発明の有機EL素子によれば、発光状態においては、通常の有機ELの発光色を、また非発光状態においては、透明な有機EL素子の裏側に配置する物の形状や色彩などを見ることができる。

【0069】この結果、時計用文字板として使用したときには、デザイン性に富みしかも暗所においても容易に時刻表示を見ることがのできる時計を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の第1の実施例における有機EL素子を示す断面図である。

【図2】本発明の第2の実施例における有機EL素子を示す断面図である。

【図3】本発明の実施例における有機EL素子の光学スペクトルを示すグラフである。

【図4】本発明の第3の実施例における有機EL素子を示す断面図である。

【図5】本発明の第4の実施例における有機EL素子を示す断面図である。

【図6】本発明の実施例における有機EL素子を用いる時計を示す断面図である。

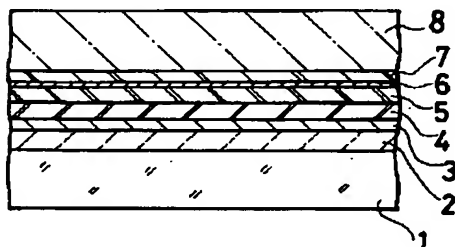
【図7】従来例における有機EL素子を示す断面図である。

【図8】従来例における有機EL素子を示す断面図である。

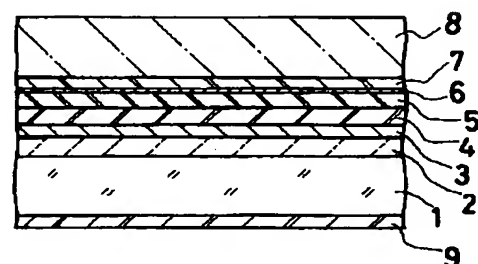
【符号の説明】

- 1 透明基板
- 2 第1の透明導電層
- 4 発光層
- 5 電子輸送層
- 6 電子注入金属層
- 7 第2の透明導電層
- 8 着色層
- 62 ムーブメント

【図2】

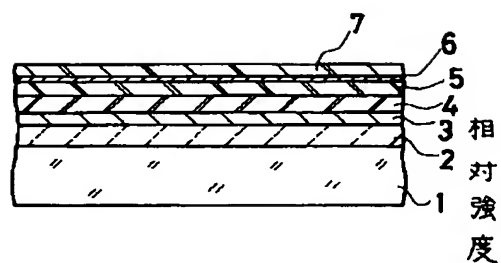


【図4】



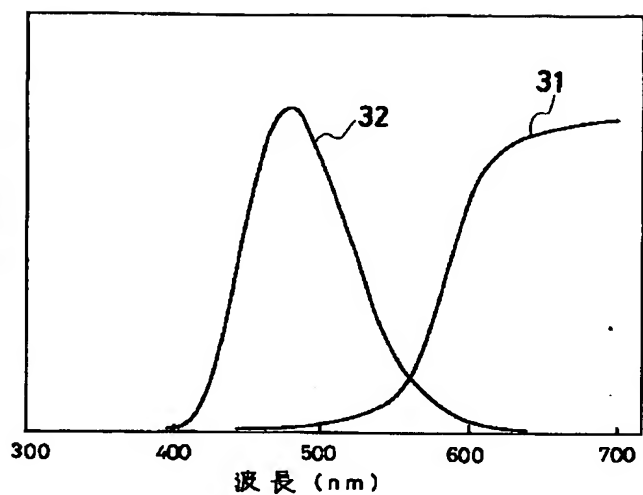
(6)

【図1】

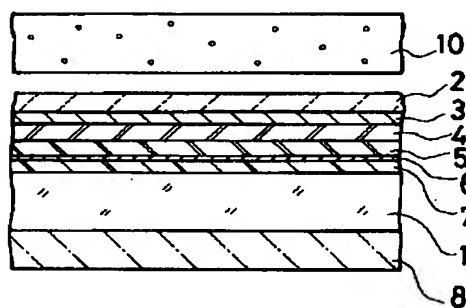


- 1. 透明基板
- 4. 発光層
- 5. 電子輸送層
- 6. 電子注入金属層

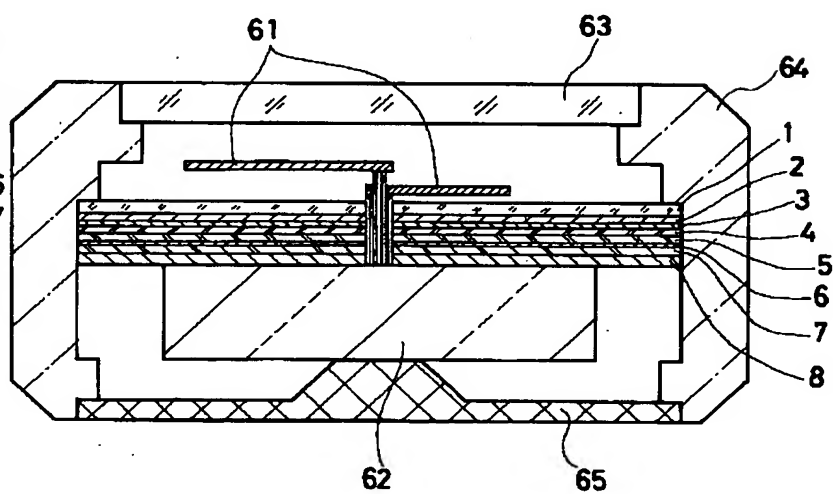
【図3】



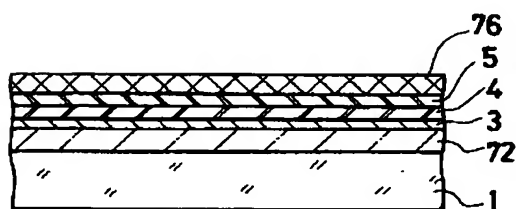
【図5】



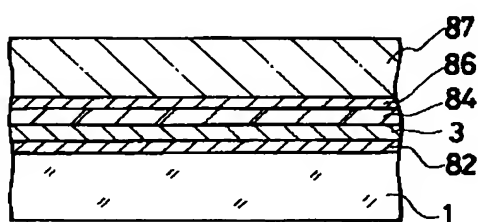
【図6】



【図7】



【図8】



(7)

フロントページの続き

(72)発明者 風間 亜矢子
埼玉県所沢市大字下富字武野840番地 シ
チズン時計株式会社技術研究所内